

I hereby certify that this correspondence is being deposited with the United States Postal Service as First Class Mail in an envelope addressed to Assistant Commissioner for Patents, Washington, D.C., 20231, on the date indicated below.

BY:

DATE:

*[Signature]*

*6/30/00*

1754

#3

9-22-00

PATENT

*Leida B.*



**IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE**

In re: Patent Application :  
of Kiyoshi TAGUCHI, et al. : Group Art Unit: 1754  
:  
Appln. No.: 09/524,160 :  
:  
Filed: March 13, 2000 :  
:  
For: Hydrogen Generating Apparatus : Attorney Docket  
: No. 10059-349 (P22431-01)

**CLAIM OF FOREIGN PRIORITY AND  
TRANSMITTAL OF PRIORITY DOCUMENT**

Applicant(s) hereby claim(s) the right of foreign priority under 35 U.S.C. Section 119 for the above-identified patent application. The claim of foreign priority is based upon Application No. Hei 11-068955, filed in Japan on March 15, 1999, Hei 11-081076, filed in Japan on March 25, 1999 and Hei 11-112787 filed on April 20, 1999 and the benefit of those dates is claimed.

Submitted herewith are certified copies of Japanese Application Nos. Hei 11-068955, 11-081076 and Hei 11-112787. It is submitted that this document completes the requirements of 35 U.S.C. Section 119, and benefit of the foreign priority is respectfully requested.

RECEIVED  
JUL 10 2000  
TECHNICAL ROOM

Respectfully submitted,

**Kiyoshi Taguchi, et al.**

*June 30, 2000*  
(Date)

By:

*[Signature]*

**William W. Schwarze**

Registration No. 25,918

**AKIN, GUMP, STRAUSS, HAUER & FELD, L.L.P.**

One Commerce Square

2005 Market Street - Suite 2200

Philadelphia, PA 19103-7086

Telephone: (215) 965-1200

**Direct Dial: (215) 965-1270**

Facsimile: (215) 965-1210

E-Mail: [wschwarze@akingump.com](mailto:wschwarze@akingump.com)

WWS:jf  
Enclosures

Attorney for Applicant



日 本 国 特 許 庁  
PATENT OFFICE  
JAPANESE GOVERNMENT

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日

Date of Application:

1999年 3月15日

出 願 番 号

Application Number:

平成11年特許願第068955号

出 願 人

Applicant (s):

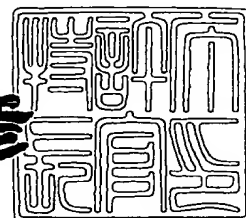
松下電器産業株式会社

RECEIVED  
JUL 10 2000  
TC 1700 MAIL ROOM

2000年 3月 3日

特許庁長官  
Commissioner,  
Patent Office

近 藤 隆 彦



出証番号 出証特2000-3012831

【書類名】 特許願

【整理番号】 2033710021

【あて先】 特許庁長官殿

【国際特許分類】 C01B 3/58

【発明の名称】 水素発生装置

【発明者】

    【住所又は居所】 大阪府門真市大字門真 1 0 0 6 番地 松下電器産業株式  
                                会社内

    【氏名】 田口 清

【発明者】

    【住所又は居所】 大阪府門真市大字門真 1 0 0 6 番地 松下電器産業株式  
                                会社内

    【氏名】 富澤 猛

【発明者】

    【住所又は居所】 大阪府門真市大字門真 1 0 0 6 番地 松下電器産業株式  
                                会社内

    【氏名】 鵜飼 邦弘

【発明者】

    【住所又は居所】 大阪府門真市大字門真 1 0 0 6 番地 松下電器産業株式  
                                会社内

    【氏名】 庄野 敏之

【発明者】

    【住所又は居所】 大阪府大阪市城東区今福西 6 丁目 2 番 6 1 号 松下精工  
                                株式会社内

    【氏名】 北河 浩一郎

【特許出願人】

    【識別番号】 000005821

    【住所又は居所】 大阪府門真市大字門真 1 0 0 6 番地

    【氏名又は名称】 松下電器産業株式会社

【代理人】

【識別番号】 100072431

【弁理士】

【氏名又は名称】 石井 和郎

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 066936

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 9301762

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 水素発生装置

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 燃料供給部、燃料改質用水供給部、CO浄化用空気供給部、改質触媒体ならびにCO変成触媒体および／またはCO浄化触媒体を備え、かつ前記燃料供給部から下流側に向けて改質触媒体、CO変成触媒体、CO浄化触媒体の順に配置してなる水素発生装置であって、前記各触媒体が、ハニカム構造、発泡体構造またはコルゲート構造をもつ担持体に触媒成分を担持させることによって構成される水素発生装置。

【請求項 2】 前記燃料供給部が炭化水素系、アルコール系またはエーテル系の燃料を供給する請求項 1 記載の水素発生装置。

【請求項 3】 前記燃料改質用水供給部が水蒸気とともに空気も供給する請求項 1 または 2 記載の水素発生装置。

【請求項 4】 前記燃料改質用水供給部が空気のみを供給する請求項 1 または 2 記載の水素発生装置。

【請求項 5】 前記担持体が耐熱性無機材料からなる請求項 1 ～ 4 のいずれかに記載の水素発生装置。

【請求項 6】 前記担持体が金属または熱伝導性無機材料からなる請求項 1 ～ 5 のいずれかに記載の水素発生装置。

【請求項 7】 前記担持体が、耐熱性無機材料と金属または熱伝導性無機材料とを複合化させてなる請求項 1 ～ 6 のいずれかに記載の水素発生装置。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、燃料電池などの燃料に用いられる水素を発生させる水素発生装置に関する。

【0002】

【従来の技術】

従来から、車載用、家庭用燃料電池に用いる水素は、メタン、プロパン、ガス

リン、灯油などの炭化水素系燃料、メタノールなどのアルコール系燃料、またはジメチルエーテルなどのエーテル系燃料を、水蒸気を加えて加熱した改質触媒に接触させて発生させている。通常、炭化水素系燃料は500～800℃程度、アルコールやエーテル系燃料は200～400℃程度の温度で改質される。

このとき、高温で反応させるほど発生する一酸化炭素(CO)の濃度が高くなるため、特に炭化水素系燃料を用いる場合には、CO濃度を低減するためにCO変成触媒を用いてCOと水蒸気を反応させている。

さらに、固体高分子型燃料電池のように100℃程度の低温で作動する燃料電池の場合には、CO濃度を数ppmレベルまで除去する必要があるため、微量の空気を加えてCOを選択的に酸化するCO浄化触媒を用いている。

そして、これらの触媒は、円柱状や球状などのペレットの形状をもつ触媒体として用いられていた。

しかし、ペレット形状の触媒体を用いる場合には、燃料電池の毎回の立ち上げ時の熱衝撃や車載時の振動などによって触媒体が崩壊するため、新たな触媒体と交換する必要が生じ、触媒成分固有の寿命まで使用することができないという問題があった。また、触媒体が崩壊して生じる触媒粉末が燃料電池の燃料流路に詰まるという問題が発生する可能性もあった。

#### 【0003】

##### 【発明が解決しようとする課題】

すなわち、従来の水素発生装置は、化学プラントなどで定常運転のみを行い、頻繁な立ち上げ操作を必要としない用途においては大きな問題はないが、車載用や家庭用燃料電池のように、運転の停止や始動を繰り返したり、激しい振動がある用途には問題があった。

以上のような事実に鑑み、本発明の目的は、運転の停止や始動を繰り返したり激しい振動がある用途においても、触媒体の性能を充分に発揮させ、その寿命を全うさせ得ることにより長期間にわたり安定して動作する水素発生装置を提供することにある。

#### 【0004】

##### 【課題を解決するための手段】

本発明は、前述の問題点を解決するために、燃料供給部、燃料改質用水供給部（以下、単に「水供給部」ともいう。）、CO浄化用空気供給部（以下、単に「空気供給部」ともいう。）、改質触媒体ならびにCO変成触媒体および／またはCO浄化触媒体を備え、かつ前記燃料供給部から下流側に向けて改質触媒体、CO変成触媒体、CO浄化触媒体の順に配置してなる水素発生装置であって、前記触媒体が、ハニカム構造、発泡体構造またはコルゲート構造をもつ担持体に触媒成分を担持させることによって構成される水素発生装置を提供する。

この水素発生装置においては、前記燃料供給部が炭化水素系、アルコール系またはエーテル系の燃料を供給するものであるのが好ましい。

また、前記水供給部が水蒸気とともに空気、または空気のみを供給するのが好ましい。

また、前記担持体が耐熱性無機材料からなるのが好ましい。

また、前記担持体が金属または熱伝導性無機材料からなるのが好ましい。

また、前記担持体が、耐熱性無機材料と金属または熱伝導性無機材料とを複合化させてなるのが好ましい。

#### 【0005】

##### 【発明の実施の形態】

本発明は、燃料供給部、燃料改質用水供給部、CO浄化用空気供給部、改質触媒体ならびにCO変成触媒体および／またはCO浄化触媒体を備え、かつ前記燃料供給部から下流側に向けて改質触媒体、CO変成触媒体、CO浄化触媒体の順に配置してなる水素発生装置であって、前記触媒体が、ハニカム構造、発泡体構造またはコルゲート構造をもつ担持体を触媒成分で被覆することによって構成される水素発生装置に関する。

#### 【0006】

以下、本発明を説明するが、理解の容易のために図面を参照し、本発明の水素発生装置における燃料（原料ガス）の流れに沿って順に説明する。

図1は、本発明の水素発生装置の一実施例の構成を示す模式図である。

図1に示す水素発生装置において、燃料は燃料供給部1から導入し、水蒸気を燃料改質用水供給部2から加える。燃料と水蒸気が混合された原料ガスは、熱交

換フィン 3 を有する流路を通して加熱される。そして、加熱用バーナー 5 で加熱された改質触媒体 4 に接触して反応し、改質ガスを生成する。このとき、排気口 6 からは、燃焼排ガスを排気する。ついで、この改質ガス中に含まれる CO 量を CO 変成触媒体 7 によって低減する。さらに、固体高分子型燃料電池で使用するためには CO を数 ppm レベルまで除去する必要があるため、CO 浄化用空気供給部 8 から微量の空気を導入し、CO 浄化触媒体 9 によって CO を酸化除去する。CO を除去した改質ガスは改質ガス出口 10 から例えば燃料電池へ供給する。

## 【0007】

まず、燃料供給部 1 から導入する燃料としては、水素を供給しうるものであれば特に制限はないが、例えば天然ガス、石炭ガス、液化石油ガス、プロパンガス、灯油、ガソリン、メタノールおよびジメチルエーテルなど、炭化水素系、エーテル系およびアルコール系などの種々の燃料があげられる。また、石油を熱分解して得られるオイルガス、液化石油ガスを混合してなる都市ガスも用いることができる。なかでも、13A の都市ガスは、メタンを主成分としており、天然ガスと同様に用いることができる。

## 【0008】

また、本発明においては、前記燃料を改質することにより水素を発生させるが、このときの改質方法としては、水蒸気を加える水蒸気改質や、空気を加えて行う部分改質、さらに両方の反応を組み合わせた改質方法など、いずれの改質方法も用いることができる。

したがって、前記改質方法の種類に応じて、水供給部 2 から水蒸気を加え、また適宜空気と水蒸気の混合物を加えてもよい。

## 【0009】

燃料と水蒸気の供給量の比は、燃料の種類、改質方法の種類などによって異なるが、燃料を  $\text{CO}_2$  と水素に転換する化学量論比以上で、かつ効率が低下しない範囲であればよい。具体的には、化学量論比にして 1～3 であればよい。

## 【0010】

改質方法として水蒸気改質法を用いる場合は、例えば以下のような範囲であればよい。



燃料の種類	燃料 1 に対する供給量
天然ガス（天然ガス）	2 ～ 5
プロパンガス	6 ～ 15
灯油	20 ～ 40
ガソリン	16 ～ 32
メタノール	1 ～ 2
ジメチルエーテル	3 ～ 6

【0011】

なお「改質」とは、一般的に、燃料と水蒸気または酸化性物質（例えば酸素）より水素を発生させること燃料の炭化水素組成を熱または触媒の力を利用して変えることによりその性状を改善する操作をいう。本発明においては、燃料と水蒸気および／または酸化性物質により水素を発生させることをいう。

【0012】

燃料供給部 1 および水供給部 2 から導入された燃料と水蒸気の原料（混合）ガスは、ついで、熱交換フィン 3 を備えた流路を通して改質触媒体 4 と接触する。流路は、例えばステンレス鋼などの金属（低温の場合は銅またはアルミニウムなども可。）などの従来公知の材料で構成すればよく、熱交換フィン 1 も従来公知のものでよい。

【0013】

改質触媒体 4 においては、前記原料ガスを加熱バーナー 5 によって加熱し、さらに改質触媒と接触させて燃料を改質し、水素ガスを発生させるという役割を果たす。

本発明においては、この改質触媒体の構造に最大の特徴を有する。すなわち、従来用いられていたペレット状の触媒体が崩壊しやすいという問題を解消するために、本発明者らは、鋭意検討の結果、以下に説明するような構造の改質触媒体を見出したのである。

すなわち、改質触媒体 4 は、ハニカム構造、発泡体構造またはコルゲート構造をもつ担持体に触媒成分を担持させることによって構成される。

【0014】

このような構成をとることにより、従来の触媒体のように崩壊も起こさず、長時間安定した特性を維持することができる。また、従来のペレット形状の触媒体と比較し、原料ガスとの接触面積が大きくなることから、効率よく反応させることができ、触媒量を少なくすることができるとともに、触媒体の熱容量も小さくできるという利点がある。

さらに、体積当たりの表面積が大きいことから、輻射や対流による放熱が大きく、熱伝導性も高いという利点があり、また、加熱バーナーからの熱が改質触媒体の全体に均一に伝わり、反応熱を速やかに取り除くことができる。

【0015】

つぎに、改質触媒体4の製造方法について説明する。

改質触媒体4は、改質触媒（触媒成分）の粉末を分散媒と混合してスラリーを作製した後、このスラリーを担持体に塗布（コーティング）し、乾燥させることによって製造することができる。

【0016】

改質触媒としては、燃料と水蒸気および／または酸素により水素を発生するという機能を有するものであれば特に制限はなく、例えばアルミナ担持ニッケルなどのNi系触媒、アルミナ担持ルテニウム、アルミナ担持ロジウムなどの貴金属触媒などがあげられる。

【0017】

本発明においては、この改質触媒を常法により粉碎して粉末とする。この粉末の粒径としては、スラリーを製造した場合にその分散性を阻害せず、担持体に担持された場合に剥離しない範囲であれば特に制限はない。具体的には、例えば0.1～2 $\mu$ mであればよい。

改質触媒粉末を分散させる分散媒としては、得られるスラリーを担持体に塗布した後に容易に飛ばすことができるものであれば特に制限はない。具体的には、例えば水、アルコールなどがあげられる。

【0018】

本発明において用いる担持体は、ハニカム構造、発泡体構造またはコルゲート構造をもつ。これは、前述のように、原料ガスとの接触面積が大きくなるため

ある。なお、発泡体構造においては、各気泡が独立していると原料ガスが通過しにくいため、各気泡は連通しているほうが好ましい。

また、担持体の材料としては、水素リッチ雰囲気および高温の使用条件において安定であれば特に制限はなく、例えばコーゼライト、アルミナ、シリカアルミナ、ムライトなどの耐熱性無機材料、炭素ケイ素などの高熱伝導性材料、各種ステンレス鋼などの金属材料などがあげられる。

#### 【0019】

前記耐熱性無機材料は、長期間高温条件で使用した場合に、安定した機能を維持（保持）するという利点がある。

前記高熱伝導性材料は、得られる改質触媒体4の温度分布が均一化され、またその温度制御が容易となって、反応効率を高めることができるという利点がある。

また、前記金属材料を用いた場合は、成形が容易で、かつ振動に極めて高い耐性を有するという利点がある。

さらに、このような担持体は、前述した材料により、例えば押出成形、ろう付けなどの従来公知の方法で製造すればよい。

#### 【0020】

前記担持体へのスラリーの塗布は、従来から塗料などの分野で用いられている公知の方法で行えばよく、例えばスプレー法、ロール法などがあげられる。

また、乾燥は、自然乾燥でもよく、加熱乾燥してもよい。なお、加熱温度を上げすぎると触媒の機能を阻害する可能性があるため、この点は注意を要する。

担持体への改質触媒成分の塗布量としては、触媒成分の種類、燃料ガスの種類などによって異なるが、当業者であれば適宜選択することができる。

#### 【0021】

また、前述のようにして得られる改質担持体4の原料ガスが通過する際の加熱温度は、燃料の種類、改質触媒の種類などによって異なるが、概して燃料が改質反応を起こして水素ガスを発生する温度であればよい。

#### 【0022】

以下に、燃料の種類ごとに加熱温度の範囲を例示する。

燃料の種類	加熱温度の範囲 (℃)
天然ガス (都市ガス)	500～800
プロパンガス	500～800
灯油	500～800
ガソリン	500～800
メタノール、ジメチルエーテル	200～400

## 【0023】

原料ガスが改質触媒体4を通過すると、改質ガスとなり、この改質ガスは通常水素の他にCOを含む（例えば、天然ガスを燃料とし、500～800℃で改質した場合は約10%のCOを含む。）。一方、本発明の水素発生装置で得られる水素を例えば固定高分子型燃料電池に用いる場合には、CO濃度を数千ppm～1%程度にまで低減させる必要がある。そこで、この改質ガスをCO変成触媒体7に通し、改質ガス中のCO濃度を数千ppm～1%程度にまで低減させるのである。

## 【0024】

CO変成触媒体7の製造方法などについては、用いる触媒の種類が異なるほかは、前記改質触媒体4の場合と同様である。

ここで用いるCO変成触媒としては、COと水蒸気を反応させてCO<sub>2</sub>と水素にするという機能を有するものであれば特に制限はなく、例えば一般に用いられるCu-Zn系触媒、Fe-Cr系触媒などがあげられる。

すなわち、ここでいう「CO変成」とは、COと水蒸気を反応させてCO<sub>2</sub>と水素にし、高いCOの濃度（例えば10%）を低濃度（例えば1～2%以下）に低減させることをいう。

また、燃料としてメタノールやジメチルエーテルなどを用いる場合は、比較的低い加熱温度で改質することができ、改質ガスが含むCO濃度も比較的低下するため、CO変成触媒体7を省略し、後述するCO浄化触媒体9のみを設けてもよい場合がある。

## 【0025】

さらに、水素を固体高分子型燃料電池において用いる場合には、CO濃度を数

p p m レベルにまで低減させることが望ましいとされている。

そこで、本発明の水素発生装置においては、CO 変成触媒体 7 を経た改質ガスを流路 c を通して CO 浄化触媒体 9 に導き、わずかに含まれている CO を酸化除去する。

このとき、CO を酸化するためには酸素が必要となるため、流路 c の途中に浄化用空気供給部 8 を設け、CO 変成触媒体 7 を経た改質ガスを空気とともに CO 変成触媒体 7 に接触させる。

#### 【0026】

CO 浄化触媒体 9 の製造方法などについては、用いる触媒の種類が異なるほかは、前記改質触媒体 4 の場合と同様である。

ここで用いる CO 浄化触媒としては、改質ガス中に含まれる CO を選択的に酸化する機能、または CO を水素と反応させてメタン化する機能を有するものであれば特に制限はなく、例えばアルミナ担持の Pt 系触媒、Ru 系触媒などがあげられる。

なお、CO を数百～数千 p p m 含んでも作動する燃料電池に本発明の水素発生装置により得られる水素を用いる場合は、CO 浄化触媒体 9 を省略することができる。

#### 【0027】

このようにして得られる CO 浄化触媒体 9 を通過した改質ガスは、改質ガス出口 10 から取り出し、例えば燃料電池などに供給することができる。

#### 【0028】

ここで、本発明の水素発生装置においては、各触媒体を具備するチャンバーおよび流路などの外側を断熱材で覆っておくのが好ましい。

また、改質触媒体 4、CO 変成触媒体 7 および CO 浄化触媒体 9 で、それぞれ最適な温度分布や伝熱条件が異なるため、改質触媒体 4 に熱伝導性に優れる金属製のハニカム構造の担持体を用いて、CO 変成触媒体 7 および CO 浄化触媒体 9 にはコーゼライト製のハニカム構造の担持体を用いるなど、耐熱性無機材料、金属材料および高熱伝導性無機材料から別々の材料を選択して用いることも有効である。

さらに、ハニカム構造の担持体を用いる場合は、その中心部に金属棒を設置したり、上流部と下流部を異なった材料で構成するなど、同一触媒体内での複合化も温度分布改善のためには有効な手段となる。

#### 【0029】

水供給部2から水蒸気の代わりに空気を加えて部分改質を行うと、改質ガスに含まれる水素の割合が減少するが、改質触媒体4で改質と同時に燃焼反応が起こり、触媒体の加熱が容易になる。この場合も、ハニカム構造を有する担持体を用いることによって、原料ガスと改質触媒体の接触面積が大きくなり、効率的な反応を可能とする。

また、空気と水蒸気を同時に加えた場合には、水蒸気改質と部分改質の中間の特性が得られる。

なお、各触媒体を内部に含むチャンバーおよび流路などは、例えばステンレス鋼などの材料から常法により製造することができる。

以下に、実施例を用いて本発明を説明するが、本発明はこれらのみに限定されるものではない。

#### 【0030】

##### 【実施例】

##### 《実施例1》

改質用、CO変成用、CO浄化用のペレット触媒体をそれぞれ粉碎し（粒径：約 $1\mu\text{m}$ ）、触媒成分：水＝1：2（重量）の比で水中に分散させてスラリー化した。これらのスラリーをコージェライト製のハニカム構造を有する担持体にコーティングし、改質触媒体4、CO変成触媒体7、CO浄化触媒体9を作製した。

これらの触媒体を図1に示す水素発生装置に組み込んだ。脱硫した都市ガスを燃料供給部1より毎分50リットル、水蒸気を水供給部2より毎分150リットル導入し、加熱用バーナー5によって改質触媒体4の温度が約800℃となるように加熱して反応させた。

改質触媒体4を通過した後の生成ガス組成は水蒸気を除き、ガスクロマトグラフィにて測定したところ、水素約80%、CO約12%、二酸化炭素約8%、メ

タン 5 0 0 p p m であった。

この改質ガスを C O 変成触媒体 7 を通過すると C O 濃度が約 3 0 0 0 p p m となり、さらに 2 % の酸素濃度となるように空気供給部 8 より空気を導入し、C O 浄化触媒体 9 で反応させたところ、C O 濃度は 5 p p m となった。

水素発生装置を一度停止させ、続いて始動させた。さらに停止、始動動作を 1 5 0 0 回繰り返して、改質ガス組成を測定したところ、改質触媒体 4 通過後のメタン濃度は 8 0 0 p p m、C O 変成触媒体 7 通過後で約 4 5 0 0 p p m、C O 浄化触媒体 9 通過後では、7 p p m であった。

【 0 0 3 1 】

#### 《実施例 2》

実施例 1 で得た水素発生装置、燃料電池および駆動用モーターを連結させて乗用車に搭載し、1 0 万 k m 走行試験を行った。

走行後、実施例 1 と同様にして改質ガスの組成をガスクロマトグラフィで測定したところ、改質触媒体 4 通過後でメタン濃度が 1 0 0 0 p p m、C O 変成触媒体 7 通過後で C O 濃度が約 4 8 0 0 p p m、C O 浄化触媒体 9 通過後では、C O 濃度は 9 p p m であった。

【 0 0 3 2 】

#### 《実施例 3》

ハニカム構造の担持体の材料としてコージェライトの代わりに F e - C r - A l 系のステンレス鋼を用いたほかは、実施例 1 と同様にして水素発生装置を作動させた。

改質触媒体 4 を通過した後の生成ガス組成は、水蒸気を除き、ガスクロマトグラフィにて測定したところ、水素約 8 0 %、C O 約 1 2 %、二酸化炭素約 8 %、メタン 3 0 0 p p m であった。

C O 変成触媒体 7 通過後には C O 濃度が約 2 5 0 0 p p m となり、さらに 2 % の酸素濃度となるように空気供給部 8 より空気を導入し、C O 浄化触媒体 9 で反応させたところ、C O 濃度は 3 p p m となった。

水素発生装置を一度停止し、続いて始動させた。さらに停止、始動動作を 1 5 0 0 回繰り返して、改質ガス組成を測定したところ、改質触媒体 4 通過後のメタ

ン濃度は700ppm、CO変成触媒体7通過後で約4000ppm、CO浄化触媒体9通過後では、6ppmであった。

#### 【0033】

##### 《比較例1》

図2に示すように、実施例1で用いた改質用、CO変成用、CO浄化用のペレット状触媒体を粉砕せずに、それぞれのチャンバーに充填し、脱硫した都市ガスを燃料供給部11より毎分50リットル、水蒸気を水供給部12より毎分150リットル導入した。

実施例1と同様に加熱用バーナーで改質触媒体14を加熱して反応させたところ、改質触媒体14を通過した後の生成ガス組成は水蒸気を除いて、ガスクロマトグラフィにて測定したところ、水素約80%、CO約12%、二酸化炭素約8%、メタン600ppmであった。

この改質ガスをCO変成触媒体17を通過するとCO濃度が約3500ppmとなり、さらに2%の酸素濃度となるように空気供給部18より空気を導入し、CO浄化触媒体19で反応させたところ、CO濃度は6ppmとなった。

この後、水素発生装置を停止し、続いて始動させた。さらに停止、始動動作を1500回繰り返して、改質ガス組成を測定したところ、改質触媒体14通過後のメタン濃度は9000ppm、CO変成触媒体17通過後のCO濃度は約14500ppm、CO浄化触媒体19通過後のCO濃度は、5500ppmであった。触媒体を反応室から出してみると、触媒体が一部崩壊しており、初期の4分の3程度の大きさとなっていた。

#### 【0034】

##### 《比較例2》

比較例1の水素発生装置、燃料電池および駆動用モーターを連結させて乗用車に搭載し、実施例2と同じく10万km走行試験をおこなった。

走行後、改質ガス組成をガスクロマトグラフィで測定したところ、改質触媒体14通過後でメタン濃度は20000ppm、CO変成触媒体7通過後でCO濃度が約16000ppm、CO浄化触媒体9通過後では、CO濃度は9000ppmであった。



ペレット状触媒体を反応室から出してみると、著しく崩壊しており、初期の 2 分の 1 程度の大きさとなっていた。

【 0 0 3 5 】

【発明の効果】

以上の実施例と比較例の装置の評価結果を比較すると明らかなように、本発明によれば、触媒の寿命を延長させ、装置の運転停止、作動の繰り返しや、激しい振動による影響を抑制し、長期間にわたって安定に動作する水素発生装置を提供することができる。

【図面の簡単な説明】

【図 1】

本発明の水素発生装置の一実施例の構成を示す模式図である。

【図 2】

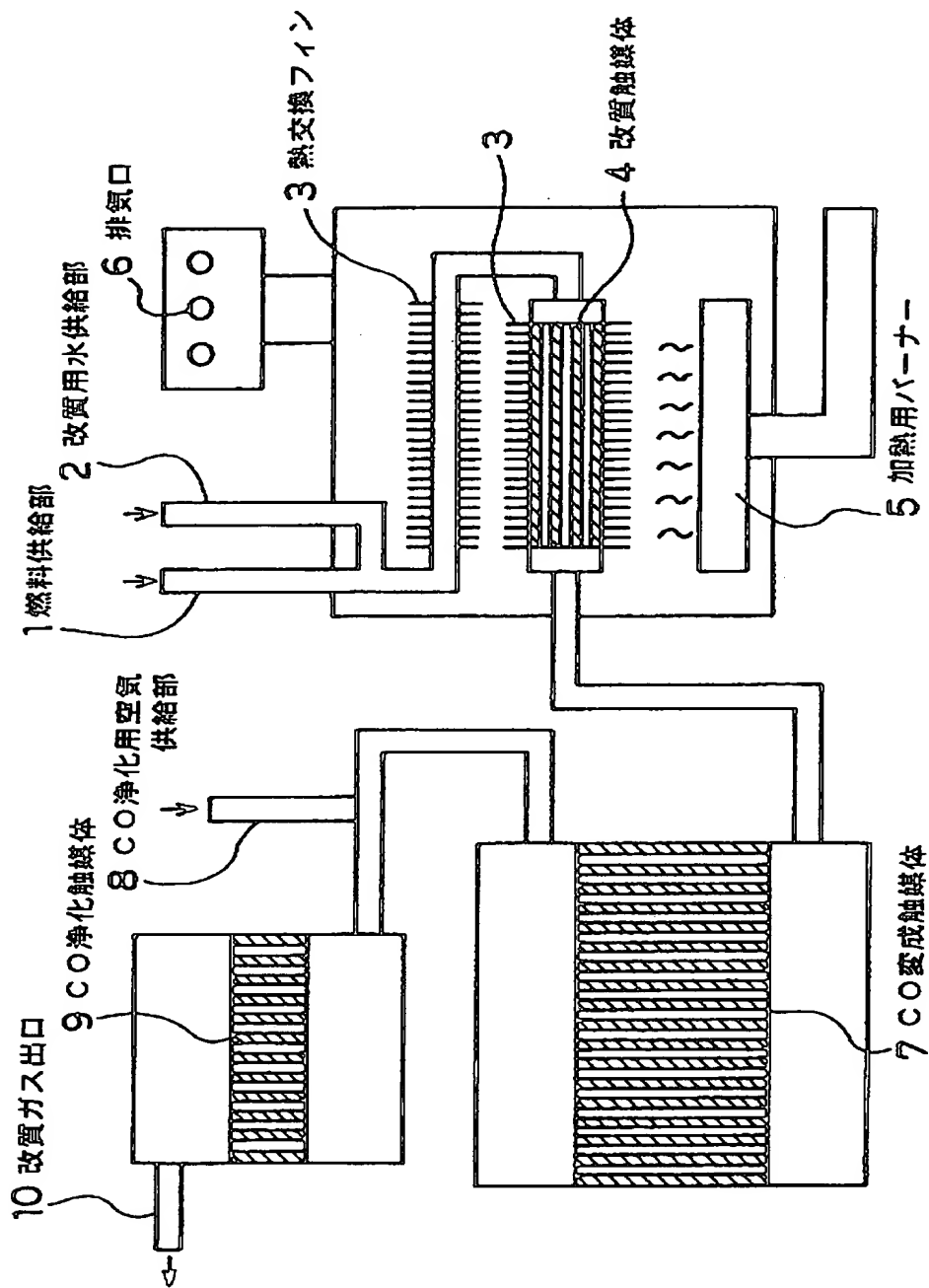
本発明の水素発生装置の比較例の構成を示す模式図である。

【符号の説明】

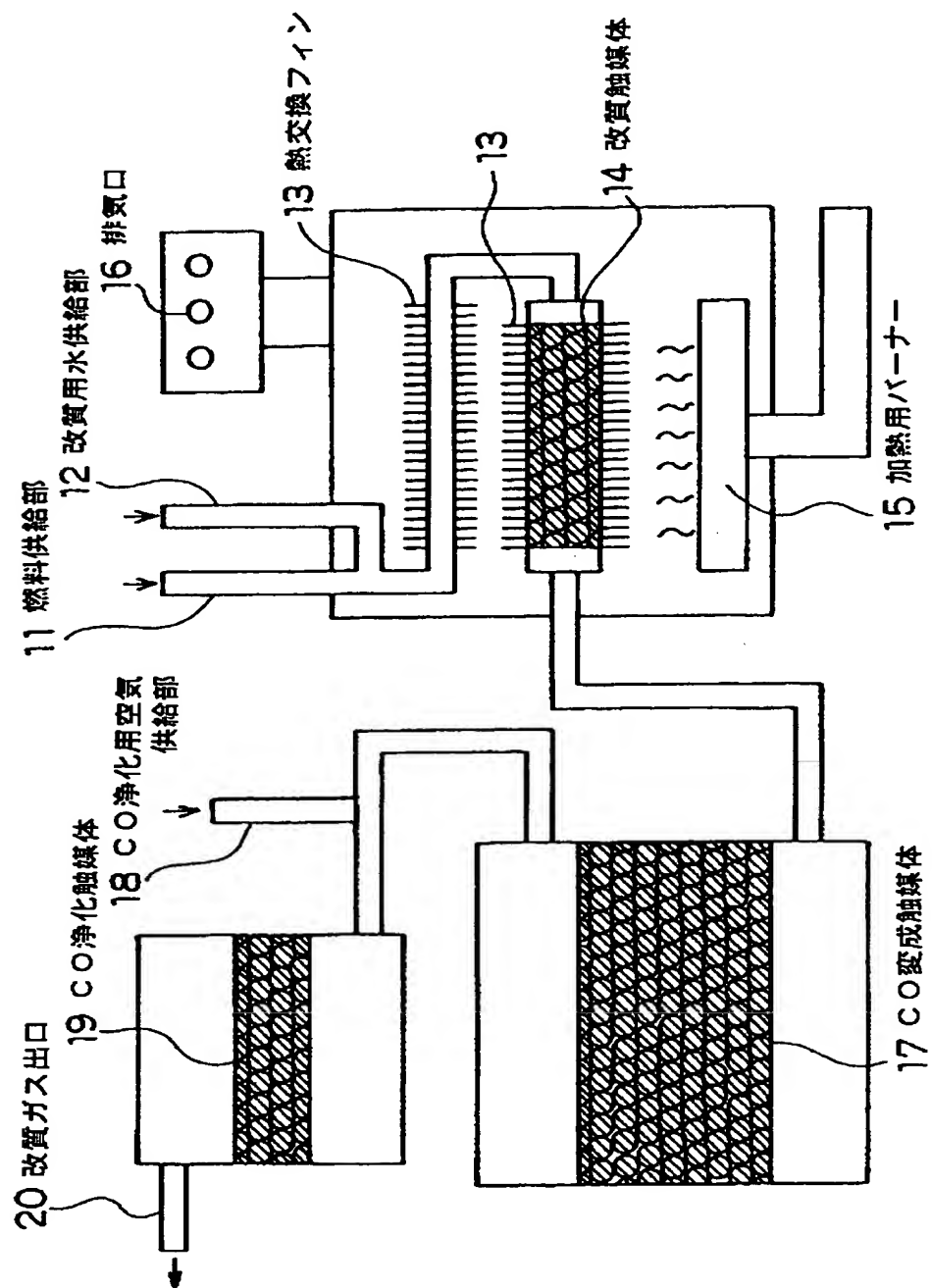
- |          |            |
|----------|------------|
| 1、 1 1   | 燃料供給部      |
| 2、 1 2   | 改質用水供給部    |
| 3、 1 3   | 熱交換フィン     |
| 4、 1 4   | 改質触媒体      |
| 5、 1 5   | 加熱用バーナー    |
| 6、 1 6   | 排気口        |
| 7、 1 7   | CO変成触媒体    |
| 8、 1 8   | CO浄化用空気供給部 |
| 9、 1 9   | CO浄化触媒体    |
| 1 0、 2 0 | 改質ガス出口     |

【書類名】 図面

【図 1】



【図 2】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 運転の停止や始動を繰り返したり激しい振動がある用途においても、触媒体の性能を充分に発揮させ、その寿命を全うさせ得ることにより長期間にわたり安定して動作する水素発生装置を提供すること。

【解決手段】 燃料供給部、燃料改質用水供給部、CO浄化用空気供給部、改質触媒体ならびにCO変成触媒体および／またはCO浄化触媒体を備え、かつ前記燃料供給部から下流側に向けて改質触媒体、CO変成触媒体、CO浄化触媒体の順に配置してなる水素発生装置であって、前記各触媒体が、ハニカム構造、発泡体構造またはコルゲート構造をもつ担持体に触媒成分を担持させることによって構成される水素発生装置。

【選択図】 図 1

認定・付加情報

特許出願の番号	平成11年 特許願 第068955号
受付番号	59900235669
書類名	特許願
担当官	第五担当上席 0094
作成日	平成11年 3月17日

<認定情報・付加情報>

【提出日】	平成11年 3月15日
-------	-------------

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [000005821]

1. 変更年月日 1990年 8月28日

[変更理由] 新規登録

住 所 大阪府門真市大字門真1006番地

氏 名 松下電器産業株式会社